

**ENGLISH TRANSLATION****of the German Patent Specification No. DE 199 05 638 C1****Hydrogen permeation layer structure**

The invention relates to a hydrogen permeation layer structure comprising a selectively hydrogen-permeable metal foil layer and woven-like or porous support layers for supporting the metal foil layer on each side.

According to the invention the one support layer has a coarser layer structure suitable for accommodating volumetric expansion bulges of the metal foil layer, whereas the other support layer has a finer structure.

It is used, for example, to selectively separate hydrogen from the product gas mixture of a hydrogen generating reaction of hydrocarbon or hydrocarbon derivative in fuel cell vehicles.

**Description**

The invention relates to a hydrogen permeation layer structure according to the preamble of claim 1. Such a layer structure serves to selectively transport only the hydrogen from a hydrogenous material mixture situated on the one side of the layer structure through the layer structure to the other side of the layer structure by means of corresponding diffusion processes and to separate the hydrogen from the rest of the substances of the material mixture in this way. The selective hydrogen transport through the layer structure is effected by the selectively hydrogen-permeable metal foil layer. In order to obtain a capability of sufficient hydrogen diffusion and to require a minimum of the mostly cost-intensive metal foil material a small thickness for the metal foil layer is desirable. Therefore, the support layers adjacent on each side serve to support the mostly very thin metal foil layer on each side.

Such a hydrogen permeation layer structure is described in the laid-open publication DE 33 32 348 A1. In this structure each of the two support layers consists at least of a fine-meshed metal net or metal fabric being adjacent to the metal foil layer and having a mesh size of up to a maximum of 50 $\mu\text{m}$ . The mesh size is chosen there such that, when there is a pressure drop during operation, a sagging of the metal foil layer is avoided between both sides. The metal foil layer preferably has a thickness of between about 10 $\mu\text{m}$  and 30 $\mu\text{m}$ . In a multilayer construction the respective support layer can additionally contain a coarser supporting framework on the fine-meshed metal net or metal fabric; this can, for example, be a support pipe formed by wires or a coarse metal net. In order to achieve a higher compression resistance and to fix the metal foil layer in

3/9

case of large areas the layer structure can be designed in a bellow-like manner. As an alternative, instead of the fine-meshed metal fabric there can be used a perforated metal sheet having correspondingly fine holes generated by means of a electron beam or a laser beam.

Hydrogen permeation layer structures are used, as is known, as separating membranes consisting, for example, of a precious metal to selectively separate hydrogen from the product gas of a hydrogen supplying reforming reaction of a hydrocarbon or hydrocarbon derivative. The partition wall can directly form a limiting wall of the reforming reaction space or can be provided in a gas purifying stage succeeding the reforming reaction space. Gas purifying systems of this kind are disclosed, for example, in the patent specifications US 5.645.626 and US 5.498.278. Reforming plants of this kind are used, for example, in fuel cell vehicles having hydrogen-operated fuel cells so as to prepare the required hydrogen from a fuel carried in liquid form, such as methanol. In this use there is an overpressure during operation on the side of the product gas, i.e. on the hydrogen inlet side of the separating membrane. In order to support the metal foil layer against this pressure drop it is useful to provide a fine-meshed or fine-pored support layer adjacent to the opposing side of the product gas of the metal foil layer. The selective hydrogen diffusion effect of the metal foil layer mostly consisting of a precious metal consists in selectively storing the hydrogen into the interstices of the metal mesh of the foil layer. This storage leads to a corresponding volumetric expansion of the mesh. It was observed that the volumetric expansion of the metal foil layer can be so strong that it bulges, supported by the fine-meshed support layer arranged on the hydrogen outlet side of the metal foil layer, towards the pressure side of the gas mixture.

4/9

With a further increase in pressure on the side of the material mixture there is then the risk of the metal foil layer breaking by buckling.

The object of the invention is, as a technical problem, to provide a hydrogen permeation layer structure of the kind mentioned at the beginning, in which the metal foil layer is capable of reliably fulfilling its selective hydrogen diffusion effect without any risk of buckling and breaking in response to volumetric expansion due to intercalated hydrogen.

The problem can be solved by the invention by providing a hydrogen permeation layer structure comprising the features of claim 1. In this layer structure the metal foil layer is supported by support layers on each side, wherein the one support layer characteristically has a coarser layer structure suitable for accommodating volumetric expansion bulges of the metal foil layer, whereas the other support layer has a finer layer structure. During operation a defined volumetric expansion of the metal foil layer can, therefore, be effected into the free mesh size or into the pores of the support layer having, to this end, the correspondingly coarser layer structure. The suitably chosen mesh size or pore size determines the degree of allowed volumetric expansion of the metal foil layer. By allowing a certain degree of volumetric expansion, material tensions in the metal foil layer can be equally distributed and too high tension loads can be avoided. On the other hand, the coarser support layer prevents the metal foil layer from bulging too strongly, which could lead to the risk of buckling and breaking. On the opposing side the other support layer having the finer layer structure functions as an equally supporting layer, the finer layer structure thereof resulting in the metal foil layer not

5/9

buckling into it or not buckling to the extent comparable to that into the opposing coarser support layer.

In further development of the invention according to claim 2 the support layer having the coarser layer structure forms the support of the metal foil layer on the hydrogen inlet side thereof, i.e. on the side of the material mixture containing the hydrogen to be separated. Since this side is usually under higher pressure than the opposing hydrogen outlet side or hydrogen collecting side, the support layer having the finer layer structure serves to equally support the hydrogen outlet side of the metal foil layer against the overpressure on the side of the material mixture.

In a further embodiment of the invention the coarser layer structure is formed, according to claim 3, by a support fabric or a porous support body having a mesh size or pore size of more than 0,1 mm, preferably having a mesh size or pore size in the range of between about 1 mm and 10 mm. It reveals that, in general, this scale of the mesh size or pore size is particularly favorable to accommodate the volumetric expansion of the metal foil layer just in the desired degree such that, on the one hand, a certain volumetric expansion is made possible and, on the other hand, a too strong bulging is prevented.

An advantageous embodiment of the invention is shown in the drawing and described in the following.

The only figure shows a schematic sectional view through a hydrogen permeation layer structure comprising a metal foil layer supported on each side.

6/9

The shown hydrogen permeation layer structure comprises, as a central component, a selectively hydrogen-permeable metal foil layer 1 of conventional composition and structure. It preferably consists of a precious metal. Its selective hydrogen permeability is based on the fact that it only lets hydrogen pass through it by means of diffusion, wherein the hydrogen can be intercalated into the interstices of its metal mesh and, in this way, can move from a hydrogen inlet side having a higher hydrogen partial pressure to the opposing hydrogen outlet side having a lower hydrogen partial pressure. The hydrogen storage leads to a volumetric expansion of the metal mesh.

In order to support the metal foil layer on each side, the hydrogen permeation layer structure contains woven-like or porous support layers 2, 3 on each of the two sides of the metal foil layer 1. Each of the support layers 2, 3 has considerably different mesh sizes or pore sizes. In the shown case, in which the two support layers 2, 3 are formed by support fabric structures, the one more fine-meshed support fabric layer 2 shown below in the figure has a mesh size a being many times smaller than the mesh size b of the other coarser support fabric layer 3 shown above in the figure. Each of the support layers 2, 3 consists of metallic, plastics, ceramic, glass or polymer materials being deposited as fabric, as shown, or alternatively, as porous body on the membrane-like metal foil layer 1.

The figure shows the hydrogen permeation layer structure in a situation of application for selectively separating hydrogen contained in a material mixture which is supplied with a pressure  $P_1$  to the upper side 4 of the figure of the metal foil layer 1 functioning as hydrogen separating membrane. The hydrogen outlet side 5 opposing this hydrogen inlet side 4 and forming a hydrogen collecting space is

7/9

under an accordingly lower (hydrogen) pressure  $P_2$ , i.e. it applies  $P_1 > P_2$ . The layer 2 having the finer support layer safely supports the hydrogen separating membrane 1 against the pressure effect subject to this pressure drop  $\Delta P = P_1 - P_2$ .

By the hydrogen intercalation and the volumetric expansion of the metal mesh connected therewith the metal foil layer 1 attempts to expand, when it is in use. The support fabric layer 3 on the hydrogen inlet side allows this volumetric expansion of the metal foil layer 1 to a certain degree determined by its mesh size b, i.e. it allows the metal foil layer 1 to expand to a certain degree towards the hydrogen inlet side 4 in the form of bulges 6. The bulges 6 can be formed, as shown, with the (mesh size) periodicity of the coarser support fabric layer 3. The mesh size a of the finer support fabric layer 2 is, however, chosen such that no bulges worth mentioning of the metal foil layer 1 into this layer occur. The bulging of the metal foil layer 1 only towards the side being under the higher pressure  $P_1$  has the advantage that it acts against the pressure effect on the metal foil layer 1 subject to the pressure drop  $\Delta P$ .

By the coarser support fabric layer 3 allowing the defined bulging of the metal foil layer 1, high inner material tensions in this layer can be avoided, as they could occur, if the metal foil layer 1 was also supported on the hydrogen inlet side by a fine-meshed or fine-pored support layer having a similarly low mesh size or pore size as the support layer 2 on the opposing hydrogen outlet side 5. Simultaneously, the coarse support fabric layer 3 prevents the metal foil layer 1 from bulging too strongly, wherein the allowed maximum degree of bulging can be determined by selecting a suitable mesh.

8/9

size b for this coarser support fabric layer 3. Thus, it can be reliably prevented that buckles and corresponding mechanical tension peaks are formed, risking a break of the metal foil layer 1. To this end, the mesh size b of the coarser support fabric layer 3 is selected in a range larger than 0,1 mm. It reveals that a mesh size b in the range of between 1 mm and about 10 mm leads to particularly satisfactory results. In doing so, the respectively most favorable mesh size b can be selected in accordance with the material and thickness of the metal foil layer 1.

The shown hydrogen permeation layer structure can, for example, be used in hydrogen generating plants of fuel cell vehicles, the fuel cells thereof being operated with hydrogen, which is prepared from a carried fuel, such as methanol, by a corresponding reaction, for example by a water vapor reforming reaction. The hydrogen permeation layer structure can directly form, as a selectively hydrogen-separating partition wall, a limiting wall of a corresponding reaction space or can be installed, as a hydrogen separating wall, into a gas purifying stage succeeding the reaction space. In this case, the hydrogenous product gas mixture which is formed during the reaction and has the gas mixture pressure  $P_1$  being typically above atmospheric pressure, is situated on the hydrogen inlet side 4, whereas the pressure  $P_2$  in the opposing hydrogen collecting space 5 is typically under atmospheric pressure or below. Due to the hydrogen permeation layer structure the hydrogen can be highly selectively separated from the rest of the components of the product gas mixture, in particular from the carbon monoxide contained therein, which is harmful for the fuel cells.

9/9

## Claims

1. A hydrogen permeation layer structure comprising
  - a selectively hydrogen hydrogen-permeable metal foil layer (1) and
  - woven-like or porous support layers (2,3) for supporting said metal foil layer on each side,  
characterized in that

the one support layer (3) has a coarser layer structure suitable for accommodating volumetric expansion bulges (6) of said metal foil layer (1) and the other support layer (2) has, in contrast, a finer layer structure.

2. A hydrogen permeation layer structure according to claim 1, characterized in that said support layer (3) situated on the hydrogen inlet side (4) of said metal foil layer (1) is that one having the coarser layer structure.

3. A hydrogen permeation layer structure according to claim 1 or 2, characterized in that said support layer (3) having the coarser layer structure is formed by a support fabric or a porous support body having a mesh size or pore size of more than 0,1 mm, preferably in the range of between about 1 mm and about 10 mm.



⑯ BUNDESREPUBLIK  
DEUTSCHLAND



DEUTSCHES  
PATENT- UND  
MARKENAMT

⑯ Patentschrift  
⑯ DE 199 05 638 C 1

⑯ Int. Cl. 7:  
B 01 D 69/10  
C 01 B 3/58

DE 199 05 638 C 1

⑯ Aktenzeichen: 199 05 638.2-44  
⑯ Anmeldetag: 11. 2. 1999  
⑯ Offenlegungstag: -  
⑯ Veröffentlichungstag  
der Patenterteilung: 8. 6. 2000

Innerhalb von 3 Monaten nach Veröffentlichung der Erteilung kann Einspruch erhoben werden

⑯ Patentinhaber:

DBB Fuel Cell Engines GmbH, 73230 Kirchheim, DE

⑯ Erfinder:

Wieland, Steffen, Dipl.-Ing., 70180 Stuttgart, DE;  
Poschmann, Thomas, Dipl.-Phys., 89073 Ulm, DE

⑯ Für die Beurteilung der Patentfähigkeit in Betracht  
gezogene Druckschriften:

DE 33 32 348 A1

⑯ Wasserstoffpermeationsschichtaufbau

⑯ Die Erfindung bezieht sich auf einen Wasserstoffpermeationsschichtaufbau mit einer selektiv wasserstoffdurchlässigen Metallfolienschicht und je einer gewebeartigen oder porösen Stützschicht zur beidseitigen Abstützung der Metallfolienschicht.  
Erfindungsgemäß besitzt die eine Stützschicht eine größere, zur Aufnahme von Volumendehnungsbewegungen der Metallfolienschicht geeignete Schichtstruktur, während die andere Stützschicht eine dagegenüber feinere Schichtstruktur aufweist.  
Verwendung z. B. zur selektiven Wasserstoffabtrennung aus dem Produktgasgemisch einer wasserstofbildenden Umsetzungsreaktion eines Kohlenwasserstoffs oder Kohlenwasserstoffderivats in Brennstoffzellenfahrzeugen.

DE 199 05 638 C 1

## DE 199 05 638 C 1

1

2

## Beschreibung

Die Erfindung bezieht sich auf einen Wasserstoffpermeationsschichtaufbau nach dem Oberbegriff des Anspruchs 1. Ein solcher Schichtaufbau dient dazu, von einem wasserstoffhaltigen Stoffgemisch, das auf einer Seite des Schichtaufbaus ansteht, selektiv nur den Wasserstoff mittels entsprechender Diffusionsprozesse durch den Schichtaufbau hindurch zur anderen Seite des Schichtaufbaus zu transportieren und auf diese Weise den Wasserstoff von den übrigen Substanzen des Stoffgemisches abzutrennen. Der selektive Wasserstofftransport durch den Schichtaufbau hindurch wird von der selektiv wasserstoffdurchlässigen Metallfolienschicht bewirkt. Um ein ausreichendes Wasserstoffdiffusionsvermögen zu erhalten und mit möglichst wenig des meist kostenintensiven Metallfolienmaterials auszukommen, ist eine geringe Dicke für die Metallfolienschicht wünschenswert. Die beidseits angrenzenden Stützschichten dienen dabei der beidseitigen Abstützung der meist sehr dünnen Metallfolienschicht.

Ein derartiger Wasserstoffpermeationsschichtaufbau ist in der Offenlegungsschrift DE 33 32 348 A1 beschrieben. Bei ihm bestehen die beiden Stützschichten jeweils mindestens aus einem an die Metallfolienschicht angrenzenden, feinmaschigen Metallnetz oder Metallgewebe mit einer Maschenweite von maximal 50 µm. Die Maschenweite ist dort so gewählt, daß bei einem im Betrieb bestehenden Druckgefälle zwischen den beiden Seiten des Schichtaufbaus ein Durchsacken der Metallfolienschicht vermieden wird. Die Metallfolienschicht besitzt vorzugsweise eine Dicke zwischen etwa 10 µm und etwa 30 µm. Die jeweilige Stützschicht kann in einer mehrlagigen Ausführung zusätzlich auf dem feinmaschigen Metallnetz oder Metallgewebe ein Tragwerk mit größerer Struktur beinhalten, z. B. ein aus Drahten gebildetes Stützrohr oder ein grobes Metallnetz. Zur Erzielung einer höheren Druckfestigkeit und zur Fixierung der Metallfolienschicht im Fall großer Flächen kann der Schichtaufbau faltenbalgähnlich gestaltet sein. Alternativ kann statt des feinmaschigen Metallgewebes ein gelochtes Metallblech mit entsprechend feinen, mittels Elektronen- oder Laserstrahl erzeugten Löchern verwendet werden.

Wasserstoffpermeationsschichtaufbauten werden bekanntmaßen als z. B. aus einem Edelmetall bestehende Abtrennmembran zur selektiven Abtrennung von Wasserstoff aus dem Produktgas einer wasserstoffliefernden Reformierungsreaktion eines Kohlenwasserstoffs oder Kohlenwasserstoffderivats verwendet. Die Trennwand kann hierbei direkt eine Begrenzungswand des Reformierungsreaktionsraums bilden oder in einer dem Reformierungsreaktionsraum nachgeschalteten Gasreinigungsstufe vorgesehen sein. Gasreinigungssysteme dieser Art sind z. B. in den Patentschriften US 5.645.626 und US 5.498.278 offenbart. Reformieranlagen dieser Art werden z. B. in Brennstoffzellefahrzeugen mit wasserstoffbetriebenen Brennstoffzellen eingesetzt, um den benötigten Wasserstoff aus einem flüssig mitgeführten Brennstoff, wie Methanol, zu gewinnen. Bei dieser Anwendung heischt im Betrieb ein Überdruck auf der Produktgasseite, d. h. der Wasserstoffaustrittsseite der Abtrennmembran. Um die Metallfolienschicht gegen dieses Druckgefälle abzustützen, ist es zweckmäßig, eine an die produktgasabgewandte Seite der Metallfolienschicht angrenzende, feinmaschige bzw. feinporeige Stützschicht vorzusehen. Die selektive Wasserstoffdiffusionswirkung der meist aus einem Edelmetall bestehenden Metallfolienschicht besteht darin, daß der Wasserstoff selektiv in die Zwischengitterplätze des Metallgitters der Folienschicht eingelagert wird. Diese Einlagerung führt zu einer entsprechenden Volumendehnung des Gitters. Es wurde beobach-

tet, daß die Volumendehnung der Metallfolienschicht so stark sein kann, daß sie sich getragen von der feinmaschigen, an der Wasserstoffaustrittsseite der Metallfolienschicht angeordneten Stützschicht zur Gasgemisch-Druckseite hin aufwölbt. Mit weiterer Druckerhöhung auf der Stoffgemischseite besteht dann die Gefahr, daß die Metallfolienschicht unter Knicken bricht.

Der Erfindung liegt als technisches Problem die Bereitstellung eines Wasserstoffpermeationsschichtaufbaus der 10 eingesangs genannten Art zugrunde, bei dem die Metallfolienschicht ihre selektive Wasserstoffdiffusionswirkung ohne Knick- und Bruchgefahr aufgrund von Volumendehnung durch eingelagerten Wasserstoff zuverlässig zu erfüllen vermag.

15 Die Erfindung löst dieses Problem durch die Bereitstellung eines Wasserstoffpermeationsschichtaufbaus mit den Merkmalen des Anspruchs 1. Bei diesem Schichtaufbau ist die Metallfolienschicht beidseitig durch je eine Stützschicht abgestützt, wobei charakteristischerweise die eine Stützschicht eine größere, zur Aufnahme von Volumendehnungswölbungen der Metallfolienschicht geeignete Schichtstruktur aufweist, während die andere Stützschicht eine demgegenüber feinere Schichtstruktur besitzt. Im Betrieb kann daher eine definierte Volumendehnung der Metallfolienschicht 20 in die freie Maschenweite bzw. in die Poren der zu diesem Zweck die entsprechend größere Schichtstruktur aufweisenden Stützschicht erfolgen. Die geeignigt gewählte Maschen- bzw. Porenweite bestimmt das Maß an zugelassener Volumendehnung der Metallfolienschicht. Indem ein gewisses Maß an Volumendehnung zugelassen wird, können Materialspannungen in der Metallfolienschicht gleichmäßig verteilt und zu hohe Spannungsbelastungen vermieden werden. Andererseits verhindert die größere Stützschicht eine zu starke Aufwölbung der Metallfolienschicht, die zur Knick- und Bruchgefahr führen könnte. Auf der gegenüberliegenden Seite fungiert die andere Stützschicht mit der feineren Schichtstruktur als gleichmäßig stützende Schicht, deren feinere Schichtstruktur zur Folge hat, daß sich die Metallfolienschicht nicht oder jedenfalls nicht in dem Maß in sie hineinwölbt wie in die gegenüberliegende, größere Stützschicht.

In Weiterbildung der Erfindung nach Anspruch 2 bildet die Stützschicht mit der größeren Schichtstruktur die Abstützung der Metallfolienschicht auf deren Wasserstoffaustrittsseite, d. h. auf der Seite des den abzutrennenden Wasserstoff enthaltenden Stoffgemisches. Da diese Seite üblicherweise auf höhcrem Druck als die gegenüberliegende Wasserstoffaustritts- bzw. Wasserstoffsammelseite liegt, dient dann die Stützschicht mit der feineren Schichtstruktur 45 zur gleichmäßigen Wasserstoffaustrittsseitigen Abstützung der Metallfolienschicht gegen den Überdruck auf der Stoffgemischseite.

In weiterer Ausgestaltung der Erfindung ist nach Anspruch 3 die größere Schichtstruktur von einem Stützgewebe oder einem porösen Stützkörper mit einer Maschen- bzw. Porenweite von mehr als 0,1 mm gebildet, bevorzugt mit einer Maschen- bzw. Porenweite zwischen etwa 1 mm und etwa 10 mm. Es zeigt sich, daß diese Größenordnung der Maschen- bzw. Porenweite im allgemeinen besonders günstig ist, die Volumendehnung der Metallfolienschicht gerade im gewünschten Maß so aufzunehmen, daß einerseits eine gewisse Volumendehnung ermöglicht und andererseits ein zu starkes Aufwölben verhindert wird.

Eine vorteilhafte Ausführungsform der Erfindung ist in 60 der Zeichnung dargestellt und wird nachfolgend beschrieben.

Die einzige Figur zeigt eine schematische ausschnittsweise Schnittansicht durch einen Wasserstoffpermeations-

## DE 199 05 638 C 1

3

4

schichtaufbau mit beidseitig abgestützter Metallfolien-schicht.

Der gezeigte Wasserstoffpermeationsschichtaufbau weist als zentrale Komponente eine selektiv wasserstoffdurchlässige Metallfolienschicht 1 herkömmlicher Zusammensetzung und Struktur auf. Vorzugsweise besteht sie aus einem Edelmetall. Ihre selektive Wasserstoffdurchlässigkeit beruht darauf, daß sie nur Wasserstoff mittels Diffusion durch sie hindurchtreten läßt, wobei der Wasserstoff in die Zwischen-gitterplätze ihres Metallgitters eingelagert und auf diese Weise von einer Wasserstoffeintrittsseite mit höherem Wasserstoffpartialdruck zur gegenüberliegenden Wasserstoff-austrittsseite mit niedrigerem Wasserstoffpartialdruck wandern kann. Die Wasserstoffeinlagerung führt zu einer Volumendehnung des Metallgitters.

Um die Metallfolienschicht beidseitig abzustützen, beinhaltet der Wasserstoffpermeationsschichtaufbau auf jeder der beiden Seiten der Metallfolienschicht 1 je eine gewebe-ähnige oder poröse Stützschicht 2, 3. Die beiden Stützschichten 2, 3 haben dabei deutlich unterschiedliche Maschen- bzw. Porenweiten. So besitzt im gezeigten Fall, in welchem die beiden Stützschichten 2, 3 von Stützgewebestrukturen gebildet sind, die eine, in der Figur untere, feinmaschigere Stützgewebebeschicht 2 eine Maschenweite a, die um ein Vielfaches kleiner ist als die Maschenweite b der anderen, in der Figur oberen, grobmaschigeren Stützgewebebeschicht 3. Beide Stützschichten 2, 3 bestehen aus einem Metall-, Kunststoff-, Keramik-, Glas- oder Polymermaterial, das als Gewebe, wie gezeigt, oder alternativ als poröser Körper auf die membranartige Metallfolienschicht 1 aufgebracht ist.

Die Figur zeigt den Wasserstoffpermeationsschichtaufbau in einer Gebrauchssituation zur selektiven Abtrennung von Wasserstoff, der in einem Stoffgemisch enthalten ist, das der in der Figur oberen Seite 4 der als Wasserstoffabtretnmembran fungierenden Metallfolienschicht 1 mit einem Druck  $P_1$  zugeführt wird. Die dieser Wasserstoffeintrittsseite 4 gegenüberliegende, einen Wasserstoffsammelraum bildende Wasserstoffaustrittsseite 5 steht unter einem entsprechend niedrigeren (Wasserstoff-)Druck  $P_2$ , d. h. es gilt  $P_1 > P_2$ . Die Schicht 2 mit der feineren Stützstruktur stützt die Wasserstoffabtretnmembran 1 sicher gegen die von diesem Druck-delta-P =  $P_1 - P_2$  bedingte Druckkrafteinwirkung ab.

Durch die Wasserstoffeinlagerung und die damit verbundene Volumendehnung des Metallgitters hat die Metallfolienschicht 1 im Gebrauch das Bestreben, sich auszudehnen. Die wasserstoffeintrittsseitige Stützgewebebeschicht 3 läßt diese Volumenausdehnung der Metallfolienschicht 1 in einem gewissen, durch ihre Maschenweite b bestimmten Maß zu, d. h. sie erlaubt ein gewisses Ausdehnen der Metallfolienschicht 1 in Form von Aufwölbungen 6 zur Wasserstoffeintrittsseite 4 hin. Die Aufwölbungen 6 können sich, wie gezeigt, mit der (Maschenweite b)-Periodizität der größeren Stützgewebebeschicht 3 bilden. Die Maschenweite a der feineren Stützgewebebeschicht 2 ist hingegen so gewählt, daß keine nennenswerten Aufwölbungen der Metallfolienschicht 1 in diese hinein auftreten. Das Aufwölben der Metallfolienschicht 1 nur zur Seite mit dem höheren Druck  $P_1$  hin bringt den Vorteil, daß sie der durch das Druckgefälle  $\Delta P$  bedingten Druckeinwirkung auf die Metallfolienschicht 1 entgegenwirken.

Indem die größere Stützgewebebeschicht 3 das definierte Aufwölben der Metallfolienschicht 1 zuläßt, lassen sich hohe innere Materialspannungen in derselben vermeiden, wie sie auftreten könnten, wenn die Metallfolienschicht 1 auch auf der Wasserstoffeintrittsseite von einer feinmaschigen bzw. feinporigen Stützschicht mit einer ähnlich geringen Maschen- bzw. Porenweite wie die Stützschicht 2 auf der gegenüberliegenden Wasserstoffaustrittsseite 5 abge-

stützt würde. Gleichzeitig verhindert die grobmaschige Stützgewebebeschicht 3 ein zu starkes Aufwölben der Metallfolienschicht 1, wobei das maximal erlaubte Maß an Aufwölbung durch Wahl einer geeigneten Maschenweite b für diese größere Stützgewebebeschicht 3 festgelegt werden kann. Damit läßt sich die Bildung von Knicke und entsprechenden mechanischen Spannungspitzen mit der Gefahr eines Bruchs der Metallfolienschicht 1 zuverlässig verhindern. Hierfür ist die Maschenweite b der größeren Stützgewebebeschicht 3 größer als 0,1 mm gewählt. Es zeigt sich, daß eine Maschenweite b zwischen 1 mm und etwa 10 mm zu besonders zufriedenstellenden Resultaten führt. Dabei kann die jeweils günstigste Maschenweite b in Abhängigkeit von Material und Dicke der Metallfolienschicht 1 gewählt werden.

Der gezeigte Wasserstoffpermeationsschichtaufbau ist beispielsweise in Wasserstofferzeugungsanlagen von Brennstoffzellenfahrzeugen verwendbar, deren Brennstoffzellen mit Wasserstoff betrieben werden, welcher fahrzeugsseitig aus einem mitgeführten Brennstoff, wie Methanol, durch eine entsprechenden Umsetzungsreaktion gewonnen wird, z. B. durch eine Wasserdampfreformierungsreaktion. Der Wasserstoffpermeationsschichtaufbau kann dabei als selektiv wasserstoffabtrennende Trennwand direkt eine Begrenzungswand eines entsprechenden Reaktionsraums bilden oder als Wasserstoffabtrennwand in einem dem Reaktionstraum nachgeschaltete Gasreinigungsstufe eingebaut sein. Auf der Wasserstoffeintrittsseite 4 steht in diesem Fall das bei der Umsetzungsreaktion gebildete, wasserstofffreie Produktgasgemisch mit typischerweise über Atmosphärendruck liegendem Gasgemischdruck  $P_1$  an, während der Druck  $P_2$  im gegenüberliegenden Wasserstoffsammelraum 5 typischerweise auf Atmosphärendruck oder darunter liegt. Durch den Wasserstoffpermeationsschichtaufbau läßt sich der Wasserstoff hoch selektiv von den übrigen Bestandteilen des Produktgasgemisches abtrennen, insbesondere von darin enthaltenem, für die Brennstoffzellen schädlichem Kohlenmonoxid.

## Patentansprüche

1. Wasserstoffpermeationsschichtaufbau mit
  - einer selektiv wasserstoffdurchlässigen Metallfolienschicht (1) und
  - je einer gewebeähnigen oder porösen Stützschicht (2, 3) zur beidseitigen Absättigung der Metallfolienschicht, dadurch gekennzeichnet, daß
    - die eine Stützschicht (3) eine größere, zur Aufnahme von Volumendehnungswölbungen (6) der Metallfolienschicht (1) geeignete Schichtstruktur und die andere Stützschicht (2) eine demgegenüber feinere Schichtstruktur aufweist.
2. Wasserstoffpermeationsschichtaufbau nach Anspruch 1, weiter dadurch gekennzeichnet, daß die auf der Wasserstoffeintrittsseite (4) der Metallfolienschicht (1) gelegene Stützschicht (3) diejenige mit der größeren Schichtstruktur ist.
3. Wasserstoffpermeationsschichtaufbau nach Anspruch 1 oder 2, weiter dadurch gekennzeichnet, daß die Stützschicht (3) mit der größeren Schichtstruktur von einem Stützgewebe oder einem porösen Stützkörper mit einer Maschen- bzw. Porenweite von mehr als 0,1 mm, bevorzugt zwischen etwa 1 mm und etwa 10 mm, gebildet ist.

Fürzu 1 Seite(n) Zeichnungen

## ZEICHNUNGEN SEITE 1

Nummer:

DE 199 05 633 C1

Int. Cl. 7:

B 01 D 69/10

Veröffentlichungstag:

8. Juni 2000

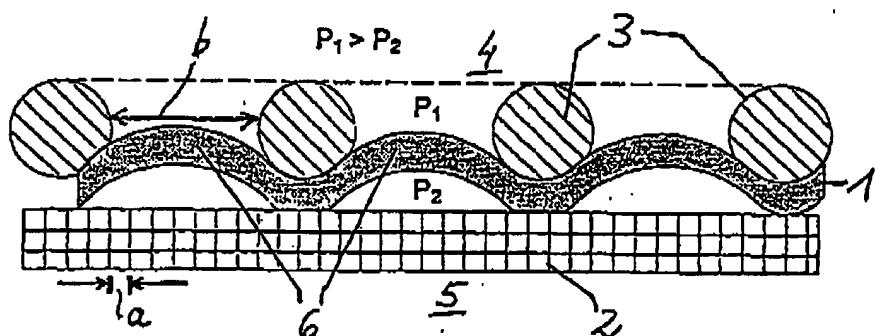


Fig.